

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-262629

(43) 公開日 平成11年(1999) 9月28日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	F I
B 0 1 D 53/56		B 0 1 D 53/34 1 2 9 A
53/81		53/04 F
53/04		B 0 1 J 20/20 D
53/34	Z A B	20/34 D
B 0 1 J 20/20		B 0 1 D 53/34 Z A B

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 8 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願平10-68339	(71) 出願人	000002886 大日本インキ化学工業株式会社 東京都板橋区坂下3丁目35番58号
(22) 出願日	平成10年(1998) 3月18日	(71) 出願人	591288355 財団法人国際環境技術移転研究センター 三重県四日市市桜町3690番地の1
		(72) 発明者	原口 和敏 千葉県千葉市稲毛区長沼原町317-1-4 -901
		(72) 発明者	中嶋 道也 千葉県佐倉市大崎台1-28-1
		(74) 代理人	弁理士 高橋 勝利

(54) 【発明の名称】 窒素酸化物の浄化方法

(57) 【要約】

【課題】 本発明が解決しようとする課題は、酸素共存下に窒素酸化物を吸着させた大量の活性炭素材を連続的、且つ安定して急速加熱処理でき、処理対象ガス中に含まれる窒素酸化物を連続的、且つ効率良く窒素に還元浄化する方法を提供することである。

【解決手段】 窒素酸化物と、窒素酸化物より多い量の酸素とを含有する浄化対象ガスを、アルカリ金属を担持させた活性炭素材に接触させることにより窒素酸化物を吸着させた後、該窒素酸化物を吸着させた活性炭素材を、実質的に酸素を含まない雰囲気で350℃以上の温度に保持された加熱流動層によって急速加熱することにより、吸着された窒素酸化物を窒素分子に還元することを特徴とする窒素酸化物の浄化方法。

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 窒素酸化物と、窒素酸化物より多い量の酸素とを含有する浄化対象ガスを、アルカリ金属を担持させた活性炭素材に接触させることにより窒素酸化物を吸着させた後、該窒素酸化物を吸着させた活性炭素材を、実質的に酸素を含まない雰囲気で 350℃以上の温度に保持された加熱流動層によって急速加熱することにより、吸着された窒素酸化物を窒素分子に還元することを特徴とする窒素酸化物の浄化方法。

【請求項 2】 窒素酸化物を吸着させた活性炭素材を 80～120℃の温度に加熱する前処理を行った後、加熱流動層により急速加熱することを特徴とする請求項 1 に記載の窒素酸化物の浄化方法。

【請求項 3】 窒素酸化物を吸着させた活性炭素材を加熱流動層に連続的に投入、及び排出することを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の窒素酸化物の浄化方法。

【請求項 4】 加熱流動層内での窒素酸化物を吸着させた活性炭素材の平均滞留時間が 5 分間以内であることを特徴とする請求項 1～3 のいずれか一つに記載の窒素酸化物の浄化方法。

【請求項 5】 アルカリ金属がカリウムであり、カリウムの担持量が 0.5～10 重量%であることを特徴とする請求項 1～4 のいずれか一つに記載の窒素酸化物の浄化方法。

【請求項 6】 加熱流動層の雰囲気が、窒素及び/又は二酸化炭素を主成分とする不活性ガス雰囲気であることを特徴とする請求項 1～4 のいずれか一つに記載の窒素酸化物の浄化方法。

【請求項 7】 加熱流動層の雰囲気が燃焼ガスであることを特徴とする請求項 6 に記載の窒素酸化物の浄化方法。

【請求項 8】 加熱流動層の雰囲気中に含まれる酸素が 0.3%以下であることを特徴とする請求項 6 又は 7 に記載の窒素酸化物の浄化方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は大気や燃焼ガス等に含まれる窒素酸化物の浄化を目的とした分野で用いられる。

## 【0002】

【従来の技術】産業の拡大に伴い、排出される環境汚染物質は増加の一途を辿っている。特に窒素酸化物は自動車需要の急激な増大や、発電所、工場等における石油、石炭の燃焼量の増加により著しい増加を示し、健康障害や酸性雨を始めとする地球的規模での汚染源として、その排出量削減は危急の課題となっている。

【0003】近年、過剰酸素共存下の窒素酸化物、例えばトンネルや地下駐車場の換気ガスや燃焼排気ガスに含まれる窒素酸化物には ppm レベルの窒素酸化物が含まれていることから、それらを浄化する方法が求められて

いる。

【0004】かかる過剰酸素雰囲気での窒素酸化物を除去するには、活性炭素材等で吸着して除くことが有効である。例えば吸着材としてはモレキュラーシーブ、シリカゲル、活性炭の他、鉄 (II) 錯体含有高分子樹脂などが知られている (例えば、公害と対策、27 巻、17 頁、1991 年)。このうち、活性炭素材を用いた吸着に関しては、従来より活性炭素材メーカーから酸性ガス用吸着材として、例えば活性炭を水酸化カリウム等のアルカリ水溶液で処理したものや、繊維状活性炭素材の細孔径を制御したもの等が提供されている。

【0005】一方、吸着された窒素酸化物を大気中に再放出することは窒素酸化物を浄化したことにはならず、かかる吸着窒素酸化物を浄化することが大きな課題となっている。これまで、吸着された窒素酸化物の浄化する方法としては、吸着窒素酸化物を吸着材から加熱により脱着したものにアンモニアを還元剤として添加し、200℃以上で窒素分子に還元する、いわゆる SCR 法が最も有効な方法として知られている。

【0006】しかしながら、SCR 法は装置が大型化することや、漏れを生じた場合に非常に有害であるアンモニアを用いることから、小規模装置や都市部近郊での使用には困難な場合が多かった。

【0007】我々は、既に過剰酸素共存下の窒素酸化物 (一酸化窒素及び/又は二酸化窒素) を特定の活性炭素材に吸着して除去した後、該活性炭素材を急速に加熱することにより、吸着させた窒素酸化物を高効率で窒素分子に還元できる方法を開発した。本方法はアンモニアが不要であること、還元反応が短時間で終了すること等の利点を有する。しかし、実用化の為に、窒素酸化物を吸着させた活性炭素材を、大量、且つ連続的に安定して急速加熱処理する方法を実現させることが必要不可欠であった。

## 【0008】

【発明が解決しようとする課題】本発明が解決しようとする課題は、酸素共存下に窒素酸化物を吸着させた大量の活性炭素材を連続的、且つ安定して急速加熱処理でき、処理対象ガス中に含まれる窒素酸化物を連続的、且つ効率良く窒素に還元浄化する方法を提供することである。

## 【0009】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、課題を解決すべく鋭意研究した結果、過剰酸素共存下の一酸化窒素及び/又は二酸化窒素を含む処理対象ガスを活性炭素材に接触させ、含まれる窒素酸化物を活性炭素材に吸着させた後、該活性炭素材を実質的に酸素を含まない雰囲気中の加熱流動層により、350℃以上の温度に急速加熱することにより、吸着させた窒素酸化物を高効率で、連続的に安定して窒素分子に還元し浄化できることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0010】即ち、本発明は、(1) 窒素酸化物と、窒素酸化物より多い量の酸素とを含有する浄化対象ガスを、アルカリ金属を担持させた活性炭素材に接触させることにより窒素酸化物を吸着させた後、該窒素酸化物を吸着させた活性炭素材を、実質的に酸素を含まない雰囲気中で350℃以上の温度に保持された加熱流動層によって急速加熱することにより、吸着された窒素酸化物を窒素分子に還元することを特徴とする窒素酸化物の浄化方法、

【0011】(2) 窒素酸化物を吸着させた活性炭素材を80～120℃の温度に加熱する前処理を行った後、加熱流動層により急速加熱することとを特徴とする

(1)に記載の窒素酸化物の浄化方法、

【0012】(3) 窒素酸化物を吸着させた活性炭素材を加熱流動層に連続的に投入、及び排出することとを特徴とする(1)又は(2)に記載の窒素酸化物の浄化方法、(4) 加熱流動層内での窒素酸化物を吸着させた活性炭素材の平均滞留時間が5分間以内であることを特徴とする、上記の(1)～(3)のいずれか一つに記載の窒素酸化物の浄化方法、

【0013】(5) アルカリ金属がカリウムであり、カリウムの担持量が0.5～10重量%であることを特徴とする、上記の(1)～(4)のいずれか一つに記載の窒素酸化物の浄化方法、

【0014】(6) 加熱流動層の雰囲気が、窒素及び/又は二酸化炭素を主成分とする不活性ガス雰囲気であることを特徴とする、上記の(1)～(4)のいずれか一つに記載の窒素酸化物の浄化方法、

【0015】(7) 加熱流動層の雰囲気が燃焼ガスであることを特徴とする(6)に記載の窒素酸化物の浄化方法、及び、(8) 加熱流動層の雰囲気中に含まれる酸素が0.3%以下であることを特徴とする(6)又は(7)に記載の窒素酸化物の浄化方法を含むものである。

【0016】

【発明の実施の形態】以下に本発明を更に詳細に説明する。本発明において、処理対象ガス中に存在する酸素は、該ガス中に含有される窒素酸化物、特に一酸化窒素より過剰に含まれていることが必要である。共存酸素の量としては、窒素酸化物が一酸化窒素だけの場合は一酸化窒素に対して2モル比以上、更に好ましくは10モル比以上含まれているのが良い。酸素が含まれていないか、又は等モル比以下の酸素しか含まれていない時は、一酸化窒素の吸着が生じないか、生じても少ない量であり本発明による除去効果が小さくなる。

【0017】処理対象ガスに含まれる窒素酸化物が二酸化窒素のみの場合は、必ずしも酸素は含まれて無くても吸着は生じるが、吸着をより高効率に行うためには、二酸化窒素より過剰の酸素が含まれている方が好ましい。従って、処理対象ガス中に一酸化窒素と二酸化窒素が共

に含まれている場合も含めて、窒素酸化物に対して少なくともそれより過剰の酸素が必要であり、好ましくは窒素酸化物(一酸化窒素と二酸化窒素の合計)の2モル比以上、更に好ましくは10モル比以上含まれているのが良い。

【0018】一方、処理対象ガス中に含まれる一酸化窒素及び/又は二酸化窒素の濃度は特に限定されない。一般に窒素酸化物として、大気ガスでは数ppm又はそれ以下の濃度、燃焼排ガスの場合は数十～数千ppmの濃度、汚染ガスではppm～%オーダーの濃度が一般的であるが、いずれに対しても適用可能である。

【0019】本発明において、処理対象ガス中に窒素酸化物と酸素以外に他種の成分ガスが含まれていることも差し支えない。例えば、二酸化硫黄や水分、又はCO<sub>2</sub>やCOまたN<sub>2</sub>等のほかプロパンやプロペンのような炭化水素類が共存する場合も本発明は有効である。具体的には、ボイラー、エンジン等からの各種燃焼排気ガス、トンネル内や工場内の窒素酸化物含有の大気ガス、又はその他の種々の局所空間における窒素酸化物汚染ガス等が挙げられる。

【0020】本発明において使用される活性炭素材としては、酸素共存下の一酸化窒素もしくは二酸化窒素を高効率で吸着できるものであり、且つ、以後の急速加熱により窒素分子への還元浄化が可能であるものが用いられる。具体的には、アルカリ金属を含有した活性炭素材が好ましい。

【0021】アルカリ金属としては、窒素酸化物の吸着率が高く、且つ、急速加熱による窒素分子への還元浄化が高効率で行える点からカリウムを含有したものは特に好ましい。活性炭素材に含まれるアルカリ金属の量としては、好ましくは0.5～10重量%が、特に好ましくは1～5重量%が用いられる。0.5重量%未満ではアルカリ金属添加効果が小さくなり、10重量%以上では、アルカリ金属を含む活性炭素材の耐熱性の低下が大きくなる問題が生じる。

【0022】また、活性炭素材の比表面積としては、窒素酸化物の吸着率が高ければ良く、特に限定されないが、好ましくは200m<sup>2</sup>/g以上のものが、更に好ましくは300m<sup>2</sup>/g以上のもの、特に好ましくは400m<sup>2</sup>/g以上のものが用いられる。200m<sup>2</sup>/g以下では一般的に窒素酸化物の吸着率が悪い。

【0023】また、用いる活性炭素材の原料は特に限定されず、例えば石炭やビッチ類、フェノール樹脂等の熱硬化性樹脂、オガクズやヤシ殻等の植物素材、またポリアクリロニトリル等の有機繊維を出発物質とするものや炭素繊維を原料とするものなどが挙げられる。

【0024】また本発明において用いる活性炭素材の形状は特に限定されず、例えば、粉末状、粒状、破砕形状等の形態を有するもの、もしくはそれらを成形してなる成形物が可能である。特にガスとの接触及び飛散防止な

どの観点から、かさ密度  $0.1 \sim 1.0 \text{ g/cm}^3$  の活性炭素材が有効である。

【0025】本発明において、吸着温度は特に限定されないが、 $50^\circ\text{C}$ 以下の温度での吸着が吸着量が大きくて好ましい。但し、 $200^\circ\text{C}$ までの範囲においても一酸化窒素及び／又は二酸化窒素を吸着することが可能である限り有効である。このような $50 \sim 200^\circ\text{C}$ の比較的高温領域での吸着は燃焼排気ガスに適用する場合において有効である。

【0026】 $200^\circ\text{C}$ 以上の温度では吸着量が大きく低下し、また共存する大過剰の酸素と活性炭素材の反応が大きくなる問題が生じる。また本発明において、急速加熱前の一酸化窒素及び／又は二酸化窒素の活性炭素材への吸着量は特に限定されない。但し、吸着量があまり少なかったり、逆に飽和するまで大量に吸着させた場合は、浄化効率が悪かったり、加熱流動層での急速加熱による窒素分子への還元効率が低下する場合がある。

【0027】本発明においては、処理対象ガス中の一酸化窒素及び／又は二酸化窒素を活性炭素材に吸着させること、そして加熱流動層により該吸着活性炭素材を加熱し、吸着された窒素酸化物の少なくとも一部を窒素分子として還元することが必須である。加熱流動層を用いることにより窒素酸化物吸着活性炭素材は急速に加熱され、効率良く窒素酸化物は窒素分子に還元される。

【0028】ここで吸着窒素酸化物の還元に必要な急速加熱は加熱流動層の温度が $350^\circ\text{C}$ 以上、好ましくは $450^\circ\text{C} \sim 700^\circ\text{C}$ に保持されていれば達成されるもので、急速加熱速度は実施例から推定すると $300^\circ\text{C}/\text{分}$ 、又はそれ以上である。昇温速度が、例えば通常の加熱昇温で用いられる $1 \sim 30^\circ\text{C}/\text{分}$ 程度であると、例えば $350^\circ\text{C}$ 以上の温度へ加熱しても、 $0 \sim 15\text{モル}\%$ しか本発明にいう吸着窒素酸化物の窒素分子への還元は生じない。

【0029】以上のように、本発明においては吸着した窒素酸化物を浄化するために $350^\circ\text{C}$ 以上、好ましくは $450 \sim 700^\circ\text{C}$ に保持された加熱流動層を用いることを必須とするもので、これにより目的とする急速加熱速度が安定して達成されるほか、大量の吸着活性炭素材を連続的に急速加熱処理することが可能となった。

【0030】ここで加熱流動層の温度が $350^\circ\text{C}$ 未満では有効な還元が起こらないか、生じていても非常に少ない。また、 $700^\circ\text{C}$ を越える温度でも吸着窒素酸化物の還元は問題なく生じるが、加熱流動層のコストが高くなるほか、活性炭素材の劣化が進行し好ましくない。

【0031】用いる加熱流動層装置としては、目的とする温度に保たれ安定した流動状態を保持した加熱流動部を有し、且つ、連続的又は間欠的に吸着活性炭素材を該加熱流動部へ供給することにより、継続して急速加熱処理することができるものであれば良く、特に装置の形状、試料供給、取り出し方式などに限定されない。例え

ば、加熱方式は予め加熱したガスのみによるものでも、加熱ガスと流動部の外部加熱との併用によるものでも良い。

【0032】また用いる加熱ガスとしても、燃焼ガスや熱交換による加熱ガス等が用いられ、特に限定されない。吸着活性炭素材の供給・取り出しは、例えば加熱流動部へ上方から吸着活性炭素材を一定量ずつ投入し、且つそれと同等量を加熱流動部の一部から取り出すことにより行える。取り出された活性炭素材は冷却装置により出来るだけ酸素に触れないようにして冷却され、その後、再利用される。

【0033】本発明において必要とされる吸着活性炭素材の加熱流動層内の保持時間は短くて良く、具体的には5分間以内が用いられる。より好ましくは3分間以内、特に好ましくは1分間以内である。5分間以上では投入エネルギーが無駄に多くなるほか、用いた活性炭素材の消耗が多くなる問題が生じる。ここで、投入した吸着活性炭素材の平均滞留時間が一定になるように、従来公知の流動層の装置工夫を行うことが好ましい。

【0034】また加熱流動層の雰囲気としては、窒素を主成分とする不活性ガス雰囲気、又は、窒素と共に水及び／又は二酸化炭素を含む雰囲気などが用いられ、実質的に酸素を含まない雰囲気であることが必要である。ここで実質的に酸素を含まない雰囲気とは、雰囲気中に含まれる酸素が少なく、活性炭素材を大きく消耗することの無い雰囲気を意味し、具体的には、酸素濃度が $0.3\%$ 以下、好ましくは $0.1\%$ 以下、特に好ましくは $0.03\%$ 以下の濃度である。

【0035】雰囲気中の酸素濃度が多いと活性炭素材の加熱流動層内での消耗、劣化が激しくなる。一方、雰囲気中に一酸化炭素や炭化水素等の還元性ガス成分を少量含むことは差し支えないが、それらや水分量、二酸化炭素量はより少ない方が好ましい。また、吸着活性炭素材を $80 \sim 120^\circ\text{C}$ の温度に、一旦、加熱した後、加熱流動層で急速加熱する方法は、吸着活性炭素材中に含まれる水分を予め除去するため急速加熱をより効果的に行うために有効に用いられる。

【0036】本発明の窒素酸化物の浄化方法により、活性炭素材に吸着された窒素酸化物（一酸化窒素及び／又は二酸化窒素）の少なくとも一部が窒素分子に還元される。具体的には $30\text{モル}\%$ 以上、好ましくは $80 \sim 100\text{モル}\%$ の吸着窒素酸化物が窒素分子に還元される。

【0037】

【実施例】次いで本発明を実施例及び比較例により更に具体的に説明する。

【0038】（参考例1）図1に示す装置を用いて、活性炭素材に窒素酸化物を含む処理対象ガスを接触させ、窒素酸化物を活性炭素材へ吸着させた。窒素酸化物の吸着量は活性炭素材の前後の窒素酸化物濃度を連続して測定することにより得た。図1において、（1）は処理対

象ガス供給装置、(2)は活性炭充填部、(3)は窒素酸化物検出装置、(4)は入り口側濃度検出用のバイパスラインを示す。

【0039】処理対象ガスは窒素ガスをベースにして、20%の酸素と以下に示す濃度の窒素酸化物を含むものを用いた。処理対象ガス中の窒素酸化物濃度としては6 ppm、又は1000 ppmを用い、また活性炭素材への窒素酸化物吸着量としては6 ppm濃度の場合、 $5 \times 10^{-4}$  モル/g-carbonを、1000 ppm濃度では $5 \times 10^{-3}$  モル/g-carbonを用いた。また吸着条件としては、空間速度6000 h<sup>-1</sup>、温度30℃、湿度30%を用いた。

【0040】(参考例2)図2に、実施例で使用した加熱流動実験装置の概要を示す。図2中、(1)は不活性ガス供給部、(2)はガス加熱部、(3)は水分添加部、(4)は透明石英容器、(5)はアルミナ粒(3~5 mm φ)充填部、(6)は外部温度制御部(電機炉)、(7)はステンレス製網(Sus網)、(8)は活性炭素材を充填した加熱流動部、(9)は熱電対、(10)は吸着活性炭素材投入部、(11)は活性炭素材取り出し部、(12)は多成分分析装置(NOやNO<sub>x</sub>等のNO<sub>x</sub>分析装置、堀場製作所製多成分分析装置PG-250)、(13)はN<sub>2</sub>O分析装置(堀場製作所製VIA-510)を示す。

【0041】また、系全体は高純度ヘリウムガスを用いて内部での未置換ガスの滞留又は外部からの空気の流入が一切無いことを各実験の前に予め確認し、(12)及び(13)については別途用意した標準ガスを用いて、各実験の前後で各成分ガス濃度の検量を行った。(1)から供給される不活性ガスは窒素ベース、酸素量=100 ppm、二酸化炭素=100 ppmを用いた。また(3)より供給される水の量は $2.8 \times 10^{-2}$  モル/リットルとした。

【0042】(実施例1)表面積が1000 m<sup>2</sup>/gの石炭系活性炭素材(1 mm φ × 2 mm)を、2モル/リットルの水酸化カリウム水溶液に浸漬後、100℃で5時間乾燥して、カリウムを2重量%担持した活性炭素材を得た。得られたカリウム担持活性炭素材50 g、及び窒素酸化物として一酸化窒素(濃度1000 ppm)を用いて参考例1の方法で一酸化窒素を吸着させた活性炭素材を得た。

【0043】得られた一酸化窒素を吸着させた活性炭素材を、参考例2の装置を用いて(但し、図2の取り出し部は蓋をして閉じてある)、加熱流動部へ5 gずつ10回にわけて1分毎に間欠的に投入した。図2中の加熱流動部の温度は500℃に設定した。

【0044】結果を図3に示す。図3は実施例1における、窒素酸化物を吸着させた活性炭素材の加熱流動部への投入の際のNO発生量と時間との関係を示す図である。図3の縦軸はNO発生量(ppm)を、横軸は時間

(分)を表す。図の上部に記載した矢印は一酸化窒素を吸着させた活性炭素材5 gの導入時(10回)を示し、グラフの実線はその際のNO発生量で示し、破線は該活性炭素材に吸着されたNOが完全に放出された場合のNO発生量を示す。

【0045】図3の結果より、NO<sub>x</sub>の放出量は全吸着NO量の7%で、NO除去率は93%であった。放出NO<sub>x</sub>としてはNOのみが観測された。また、NO<sub>x</sub>の放出はほぼ0.5分で終了した。更に、本実験終了後に系全体を600℃まで10℃/分で昇温したが、新たなNO<sub>x</sub>の放出は無く、活性炭素材に吸着されたNOが500℃での流動層内加熱で残っていないことが確認された。更に、N<sub>2</sub>O分析装置でN<sub>2</sub>Oが観測されなかったことと併せて、図3に示された93%のNO除去分は全てN<sub>2</sub>に還元され浄化されたと結論された。

【0046】(実施例2)参考例2の装置(加熱流動部温度は500℃設定)に、実施例1で用いたのと同じ一酸化窒素を吸着させた活性炭素材を50 g/分で連続的に供給、排出した。平均滞留時間が2分になるよう加熱流動部容積を設定した。実施例1と同様な流動層排出ガスの分析より活性炭素材に吸着されたNOの8%が検出され、92%が還元された。

【0047】(実施例3~5)加熱流動部の温度を400℃(実施例3)、600℃(実施例4)、700℃(実施例5)とする以外は、実施例2と同様にしてNO<sub>x</sub>浄化試験を行った。結果を表1に示す。

【0048】(比較例1)実施例1と同じ一酸化窒素を吸着させた活性炭素材を用いて、加熱流動層の温度を300℃とする以外は実施例1と同様にしてNO<sub>x</sub>浄化試験を行った。吸着NOの91%がNOとして排出ガス中及びその後の600℃迄の加熱過程において観測された。

【0049】(比較例2)参考例1において加熱部を流動させることなく、室温に保持した。実施例1と同じ一酸化窒素吸着活性炭素材、50 gを投入後、室温より10℃/分で500℃まで昇温加熱し、NO<sub>x</sub>浄化試験を行った。吸着の89%がNOとして排出ガス中に観測された。

【0050】(実施例6及び7)参考例1で用いた窒素酸化物が一酸化窒素でその濃度が6 ppmであること(実施例6)、窒素酸化物が二酸化窒素でその濃度が1000 ppmであること(実施例7)以外は、実施例1と同様にしてNO<sub>x</sub>浄化試験を行った。結果を表1に示す。

【0051】(実施例8及び9)一酸化窒素吸着活性炭素材の加熱流動層での平均滞留時間が0.8分(実施例8)、4分(実施例9)であること以外は実施例2と同様にしてNO<sub>x</sub>浄化試験を行った。結果を表1に示す。

【0052】(実施例10)参考例2における不活性ガスとして、プロパンの燃焼ガスを用いた以外は実施例2

と同様にしてNO<sub>x</sub>浄化試験を行った。なお、燃焼ガス中の酸素濃度は200ppmであった。結果を表1に示す。

【0053】（比較例3、4及び実施例11）カリウム担持量が0重量%（水酸化カリウム水溶液での処理無し）（比較例3）、0.1重量%（比較例4）、5重量%（実施例11）である活性炭素材を用いる以外は実施例2と同様にしてNO<sub>x</sub>脱硝試験を行った。比較例3では吸着NOの95%が、比較例4では吸着NOの90%が排出ガス中に観測された。一方、実施例11では吸着NOの7%が観測されたのみであった。

【0054】（実施例12）水酸化ナトリウム水溶液を用いて処理することによりナトリウムを2重量%担持した活性炭素材を作成し、該ナトリウム担持活性炭素材を用いること以外は実施例2と同様にしてNO<sub>x</sub>浄化試験を行った。結果を表1に示す。

【0055】（実施例13）実施例1と同じ一酸化窒素を吸着させた活性炭素材を100℃で15分間加熱した後、比較例1と同じ方法でNO<sub>x</sub>の放出量を調べた。その結果、比較例1の場合と同様に90%のNOが観測され、110℃での加熱によって吸着された一酸化窒素は殆ど変化していないことが観測された。次いで、このサンプルを用いて、実施例1と同様にしてNO<sub>x</sub>浄化試験を行った。結果を表1に示す。

\*【0056】

【表1】

実施例	3	4	5	6	7	8	9	10	12	13
還元率 (%)	40	93	97	90	92	91	92	92	77	88

【0057】

【発明の効果】本発明は、加熱流動層を用いることにより、酸素共存下に窒素酸化物を吸着させた大量の活性炭素材を連続的、且つ安定して急速加熱処理でき、処理対象ガス中に含まれる酸素共存下の一酸化窒素及び／又は二酸化窒素等の窒素酸化物を連続的、且つ高効率で窒素に還元浄化する方法を提供することができる。

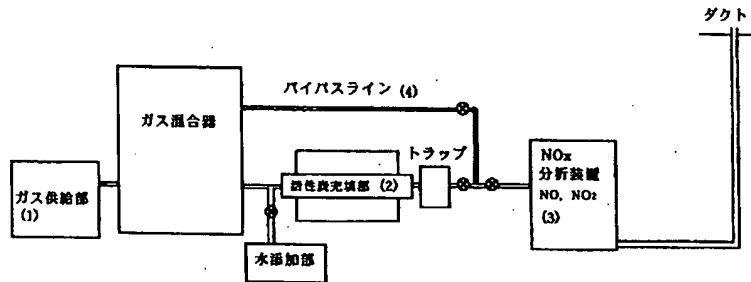
【図面の簡単な説明】

【図1】 処理対象ガス中の窒素酸化物を活性炭素材に吸着させる実験装置の概要を示す図である。

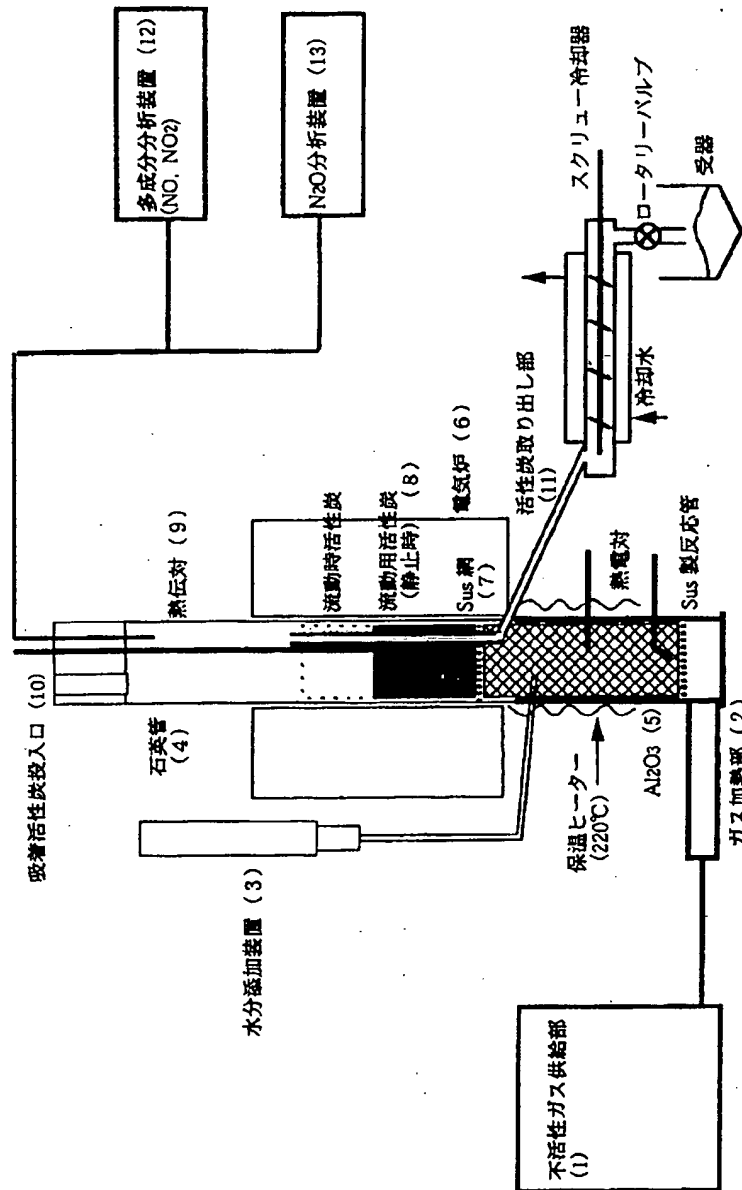
【図2】 窒素酸化物を吸着させた活性炭素材を、加熱流動部により浄化する実験装置の概要を示す図である。

【図3】 実施例1における、窒素酸化物を吸着させた活性炭素材の加熱流動部への投入の際のNO発生量と時間との関係を示す図である。

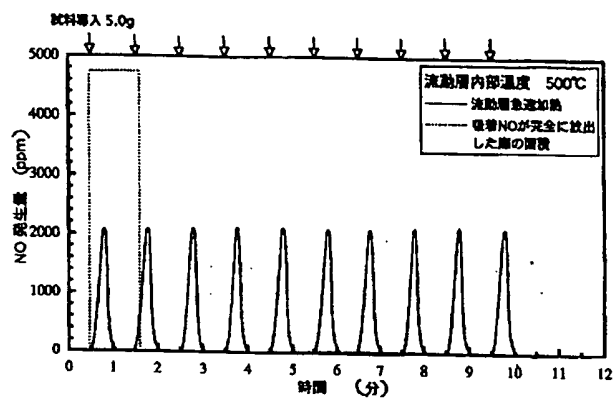
【図1】



【図2】



【図3】



フロントページの続き

(51) Int. Cl.<sup>6</sup>

B01J 20/34

識別記号

F I